

Effect of Boron Carbide on the Morphology of SiC Conversion Layer of Graphite Substrate formed by Chemical Vapor Reaction

Hyun-Jung Hong, Doh-Hyung Riu,[†] Kwang-Youn Cho, Eun-Bae Kong,
Dong-Geun Shin, Dae-Kyu Shin,* and Jae-Sung Lee**

Nano Materials Team, KICET(Korea Institute of Ceramic Engineering and Technology), Seoul 153-801, Korea

*Hynix Semiconductor, Gyeonggi-Do 467-701, Korea

**Department of Metallurgy and Materials Engineering, Hanyang University, Ansan 426-791, Korea

(Received July 12, 2007; Accepted August 8, 2007)

화학기상반응으로 흑연 위에 만든 SiC 반응층의 모양에 미치는 보론 카바이드의 영향

홍현정 · 류도형[†] · 조광연 · 공은배 · 신동근 · 신대규* · 이재성**

요업기술원 나노소재팀

*하이닉스 반도체

**한양대학교 금속재료공학과

(2007년 7월 12일 접수; 2007년 8월 8일 승인)

ABSTRACT

A conversion layer of SiC was fabricated on the graphite substrate by a chemical vapor reaction method in order to enhance the oxidation resistance of graphite. The effect of boron carbide containing powder bed on the morphology of SiC conversion layer was investigated during the chemical vapor reaction of graphite with the reactive silicon-source at 1650°C and 1700°C for 1 h. The presence of boron species enhanced the conversion of graphite into SiC, and altered the morphology of the conversion layer significantly as well. A continuous and thick SiC conversion layer was formed only when the boron source was used with the other silicon compounds. The boron is deemed to increase the diffusion of SiO_x in SiC/C system.

Key Words : CVR, Chemical Vapor Reaction, Graphite, SiC coating, Boron carbide doping

1. 서 론

흑연은 높은 열전도도와 낮은 비중, 낮은 탄성계수와 열팽창계수 등의 물성을 갖고 있어 다양한 분야에 응용되는 좋은 재료이다. 그러나, 500°C 이상 고온의 산소가 존재하는 분위기 중에서 급속하게 산화되기 때문에^{1,2)} 고온의 산소가 존재하는 영역에서의 사용을 위해 산화억제제를 첨가하거나 흑연의 표면에 내산화성이 우수한 코팅을 실시하여 산화 저항성을 높이는 방법이 사용되어 왔다.³⁻¹⁷⁾ 산화 억제제를 첨가할 경우,³⁾ 약 1000°C까지는 산화를 억제할 수 있으나 그 이상의 온도에서는 효과가 적다. 내산화 코팅재료는 흑연과의 열팽창계수가 유사하고 열분해 온도가 높으며 내마모성, 내약품성 등이 우수한 탄화규소가 가장 적합한 것으로 알려져 있다.⁴⁻¹⁰⁾

탄화규소를 코팅하는 방법은 1) MTS를 이용한 CVD법,¹¹⁾

2) 혼합 분말에 흑연을 묻어서 코팅하는 Pack-cementation 법,¹²⁾ 3) 폴리머 전구체를 딥코팅한 후 열처리하는 방법¹³⁾ 및 이들 방법을 결합하여 두 가지 코팅층을 사용하는 경우¹⁴⁾가 보고 되고 있다. 그 중 Pack-cementation법은 흑연의 표면으로부터 경사조성의 코팅이 이루어져 열팽창계수 차이에서 오는 균열의 발생을 최소화할 수 있는 코팅 방법으로서 다양하게 연구되고 있다. 이 방법은 보다 세분하여, 시편을 분위기 분말에 묻어서 코팅하는 방법,¹⁵⁾ 시편과 분위기 분말을 거리를 두고 코팅하는 방법,¹⁶⁾ Si계 슬러리를 시편에 코팅한 후 반응 시키는 방법¹⁷⁾ 등으로 나뉘어져 연구되어 왔다.

시편을 분위기 분말에 묻어서 코팅하는 방법은 가장 많이 사용되어온 방법으로 두꺼운 코팅층을 얻을 수 있으나, 시편과 분말이 직접 접촉하게 되어 코팅층의 표면이 거칠어질 수 있다. 시편과 분위기 분말의 거리를 일정하게 두고 기상 증착을 통해 코팅하는 방법은 시편의 표면이 거칠어지지 않고 균일하게 코팅될 수 있으나, 형성되는 코팅층이 얇다. 슬러리를 표면에 코팅하는 방법은 코

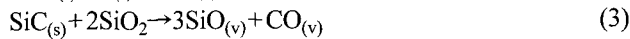
[†]Corresponding author : Doh-Hyung Riu

E-mail : dhriu15@kicet.re.kr

Tel : +82-2-3282-2497 Fax : +82-2-3282-7769

팅층의 표면에 전처리를 해야 균일한 코팅층을 얻을 수 있고, 코팅 후 소결 열처리 공정을 진행해야 하는 등 다른 공정에 비해 복잡하다.¹⁷⁾

Si의 융점 이상의 온도에서 분위기 분말로부터 발생하는 Si계의 가스와 흑연과의 반응은 다음과 같은 화학식으로 나타낼 수 있다.^{18,19)}



이들 반응 중에서 Si의 용융점보다 충분히 높은 온도에서 Si(g)의 vapor pressure가 충분히 높고, 또 SiO와 C의 반응이 활발하여 SiO(v)가 잘 공급되는 조건에서는 (4), (5)번의 반응이 SiC 코팅층 형성의 속도를 제어하는 반응이 될 것으로 예상된다.

Si계 반응가스와 흑연의 반응은 반응가스의 조성 뿐만 아니라 흑연재의 표면의 특성에도 관계된다. 흑연 표면으로 열려있는 기공과 입계 균열이 기체상인 Si-계 반응가스의 공급로가 될 것이다. 흑연재의 밀도와 화학기상반응에 의한 SiC 코팅층 형성의 속도에 대한 연구에 따르면 기공율이 높은 흑연재의 SiC 코팅층이 더 두껍게 형성되었다.¹⁸⁾ 반응분말 중에 Al_2O_3 , MgO 등 Si계가 아닌 다른 금속 산화물을 함께 혼합하여 사용한 문헌도 있었으나,^{20,21)} boron의 영향만을 연구한 보고는 없었다.

본 연구에서는 제조사와 밀도가 다른 흑연 시편은 분위기 분말과 거리를 두고 배치하여 탄화규소로 기상화합반응하는 방법으로 코팅을 실시하면서, Si계 분말에 보론 카바이드를 첨가한 분위기 분말이 SiC 코팅층에 미치는 영향을 고찰하였다.

2. 실험 방법

실험에 사용된 3 종류의 흑연 모재를 Table 1에 정리하여 나타내었다. A, B는 Toyo tanso(일본)에서 제조된 1.77 g/cm^3 , 1.82 g/cm^3 의 밀도를 갖는 IG-11과 ISO-68이었고, C는 Le carbone-lorraine(프랑스)에서 제조된 1.85 g/cm^3 의 밀도를 갖는 ELLOR+30 이었다. 각각의 흑연 시편을 $5 \times 5 \times 5 \text{ mm}^3$ 으로 자른 후, #1000, #2000 SiC 연마지를 사용하여 각 면을 연마했다. 시편을 에탄올 내에서 초음파 세척기로 세척한 후, 60°C 의 건조기에서 24시간 건조했다. 기상 반응을 위한 분위기 분말은 Si 분말(Riedel-de Haen, Germany), Silicon dioxide(JUNSEI, Japan), B_4C ($< 10 \mu\text{m}$, Aldrich, USA), SiC (250-400 mesh, Aldrich, USA)를 사용하였다. 각 분말을 칭량하여 Si:SiO₂:SiC=7:1:2, Si:SiO₂:SiC:B₄C=6:2:1:1이 되도록 혼합한 후 유발 분쇄

Table 1. Properties of Graphite Substrate Used in This Experiment

ID	Porosity(%)	Density(g/cm ³)	Manufacturer & Product name
A	not determined	1.77	IG-11 (Toyo tanso)
B	not determined	1.82	ISO-68 (Toyo tanso)
C	7	1.85	Error+30 (Lecarbhone-lorraine)

Table 2. The Sample ID and the Composition of the Powder Bed Used

sample ID.	Pack powder mixture (wt%)			
	Si	SiO ₂	SiC	B ₄ C
SOC	70	10	20	-
SOCB	60	20	10	10

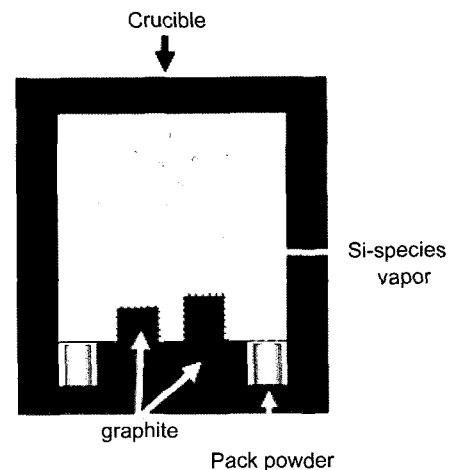


Fig. 1. A schematic figure illustrating the experimental set-up for chemical vapor reaction using a remote powder bed.

했다. 이를 각각 SOC 조성, SOCB 조성이라 하였으며, 이를 Table 2에 정리하여 나타내었다.

Fig. 1과 같이 흑연 도가니의 홈에 분쇄한 분위기 분말을 채워 넣어, 시편과 분위기 분말이 직접 닿지 않도록 배치하였다. 시편을 넣은 도가니를 고온 진공로에 넣고 진공 상태에서 Ar 가스를 주입하고 20분간 분위기 치환을 실시했다. Ar 분위기에서 상온에서 1000°C 까지는 10°C/min 으로 승온하고 1000°C 이상의 온도에서는 5°C/min 으로 승온하여 반응 온도에서 1시간 반응시킨 후 로냉하였다.

생성된 코팅층의 상 분석을 위해 XRD(FR-150, Enraf-Nonius Co., Netherland)를 이용하여 2θ 가 $20^\circ \sim 80^\circ$ 의 범위에서 peak값을 관찰 비교하였다. FE-SEM(JSM-6700F, JEOL Co., Japan)으로 코팅층의 미세구조를 관찰하고, EDS(JXA 8200, Genesis, USA)로 표면의 조성을 분석하였다.

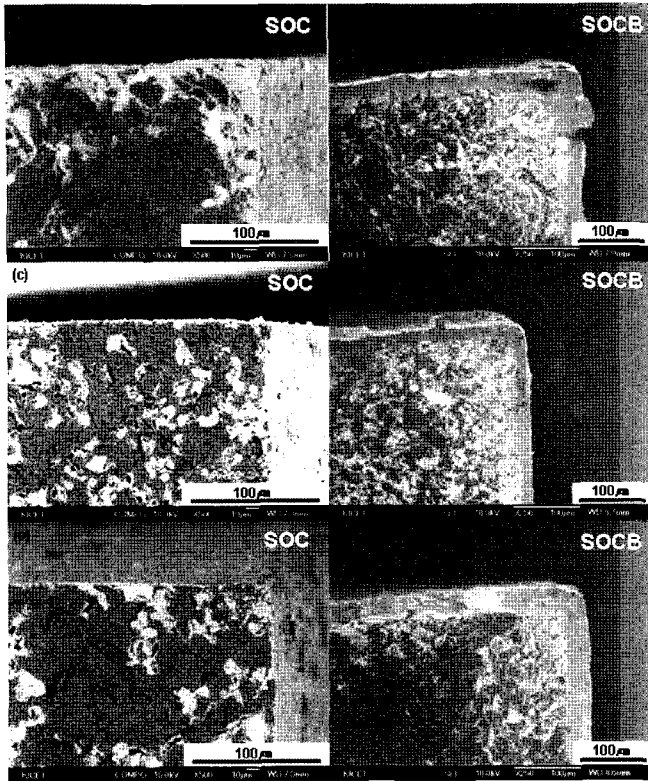


Fig. 2. FE-SEM micrographs of fractured cross-section of graphite samples that were chemical vapor reaction treated at 1650°C for 1 h under a flowing Ar atmosphere. SOC denotes the case of Si:SiO₂:SiC=7:1:2, SOCB denotes the case of Si:SiO₂:SiC:B₄C=6:2:1:1; (a)&(b) Sample A (1.77 g/cm³), (c)&(d) Sample B (1.82 g/cm³), and (e)&(f) Sample C (1.85 g/cm³).

3. 실험 결과 및 고찰

Fig. 2는 SOC(Si:SiO₂:SiC=7:1:2), SOCB(SiO₂:SiC:B₄C=6:2:1:1) 조성의 분위기분말을 이용하여 밀도가 다른 흑연 모재를 1650°C에서 1시간 기상화학반응(CVR)을 실시한 후, 미세구조 변화를 관찰한 주사전자현미경 사진이다.

(a), (c), (e) (흑연모재 밀도: (a)<(c)<(e))는 SOC 분위기 분말을 사용한 경우로 공통적으로 표면의 코팅층 두께가 균일하지 않고, 10 μm 미만으로 매우 얇았으나, 흑연 모재의 기공을 통해 100 μm 이상 깊은 부분까지 균대 균대 SiC 상이 형성되어 있는 것이 관찰되었다. 코팅층의 두께는 (a)가 가장 두꺼웠으며, (c), (e)로 갈수록 코팅층이 얇아지고, 표면에서 내부로 침투한 SiC의 양이 줄어든 것이 관찰되었다. (a), (c), (e)의 비교를 통해서 밀도가 높을수록, 즉, 기공율이 낮을수록 코팅층의 두께가 얇아지고 흑연 내부로의 침투 또한 적게 일어나는 것을 알 수 있었다. 시편의 기공율에 따른 코팅층의 깊이 변화는 Yoon & Choi 등의 연구 결과와 유사하였다.¹⁸⁾ (b), (d), (f) (흑연모재 밀도: (b)<(d)<(f))는 SOCB 분위기 분말을 사용

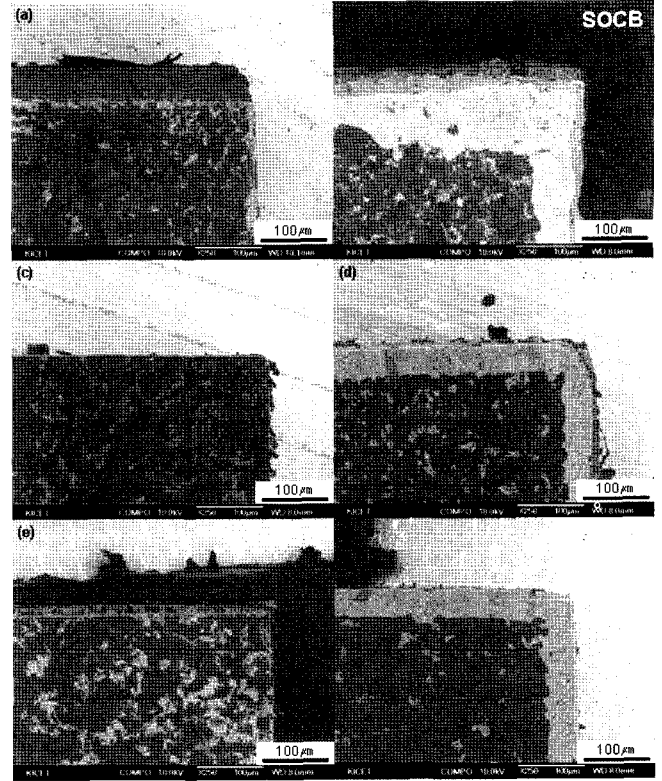


Fig. 3. FE-SEM micrographs of fractured cross-section of graphite samples that were chemical vapor reaction treated at 1700°C for 1 h under a flowing Ar atmosphere. SOC denotes the case of Si:SiO₂:SiC=7:1:2, SOCB denotes the case of Si:SiO₂:SiC:B₄C=6:2:1:1; (a)&(b) Sample A (1.77 g/cm³), (c)&(d) Sample B (1.82 g/cm³), and (e)&(f) Sample C (1.85 g/cm³).

한 경우로 (b), (d), (f) 시편 모두 표면에 균일하고 연속적인 50 μm 이상의 코팅층이 형성되었다. 코팅층은 치밀하였으며 흑연 모재의 밀도에 따른 차이가 없는 것으로 보였다.

(a), (c), (e)와 (b), (d), (f)를 비교해 보면, 분위기 분말에 B₄C가 첨가되면 코팅층의 미세구조의 뚜렷한 차이가 발생한 것을 알 수 있다. B₄C 첨가에 의해 코팅층의 내부 확산 반응 경로가 달라지거나 확산 계수의 증가로 인하여 낮은 온도에서도 반응속도가 빨라진 때문으로 추정하였다. 따라서, B₄C의 첨가가 단순히 반응 속도를 높여 주는 역할을 하는 것은 아닌지 확인하기 위하여 반응 온도를 50°C 높여 1700°C에서 동일한 조건의 실험을 반복하였다.

Fig. 3은 SOC, SOCB 분위기 분말을 이용하여 1700°C에서 1시간 기상화학반응을 실시한 후, 파단면의 미세구조를 관찰한 주사전자현미경 사진이다. 1650°C에서 반응한 코팅층 미세 구조와 유사한 경향이 관찰되었다. 반응 온도의 상승으로 SOC를 분위기 분말로 사용한 (a), (c), (e)의 경우 표면에 생성된 코팅층의 두께는 큰 변화가 없

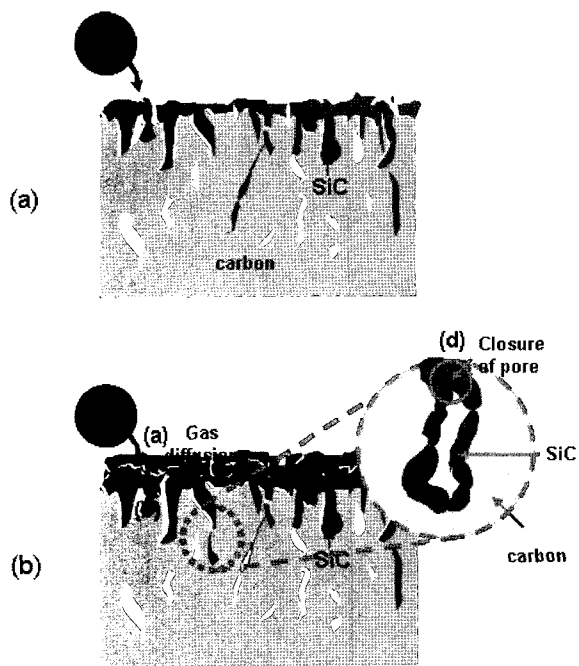


Fig. 4. Schematic drawings which explain the chemical vapor reaction process with in the presence of boron carbide source. When boron carbide was used together with $\text{SiO}(\text{v})$ generating source, Si-species diffusion along the boundary of C/SiC interface was enhanced. The boron species enhance the reaction of $\text{SiO}(\text{g})$ with carbon by increasing the diffusion coefficient of $\text{SiO}_x(\text{g})$ species along the lattice of the converted SiC layer and Si/C interface as well; (a)boron free case (b)boron addition case.

었고, SOCB를 분위기 분말로 사용한 (b), (d), (f)의 경우 코팅층이 더욱 두꺼워졌다. 즉, SOC의 경우 반응 온도를 높여도 SOCB와 같은 경향을 보이지 않았다. B_4C 첨가가 반응속도를 높이는 역할 만을 하고 있는 것이 아니라 코팅층의 형성기구를 변화시키는 어떤 역할을 하는 것으로 판단 할 수 있었다.

Fig. 4에 B_4C 첨가가 $\text{SiO}(\text{v})$ 의 확산에 미치는 영향을 도식화하여 나타내었다. 분위기 분말에 B_4C 가 첨가되지 않은 경우는 가스 상태의 $\text{SiO}(\text{v})$ 가 표면의 탄소와 반응하거나^(a) 기공이나^(b) 계면의 균열^(c)을 통해 모재의 내부로 깊숙이 침투되어 층이 형성된다.(Fig. 4(a)) 반면, 분위기 분말에 B_4C 가 첨가된 경우는 $\text{SiO}(\text{v})$ 가 표면의 탄소와 반응하고, 반응을 통해 SiC로 전환된 코팅층 내부에서 붕소의 첨가로 인해 빠른 확산이 이루어져, 연속적인 코팅층이 생성되고, 이로 인해 흑연 내부의 깊은 기공까지의 직접적인 침투는 줄어들고, SiC 코팅층이 균일하고 두껍게 형성될 것이라 예상된다.

Fig. 5는 SOC 조성의 분위기 분말로, 기상화학반응을 실시하였을 때의 XRD 분석 결과이다. 모든 조건에서 Carbon peak(JCPDS #41-1487)가 관찰되었다. 정확한 비교

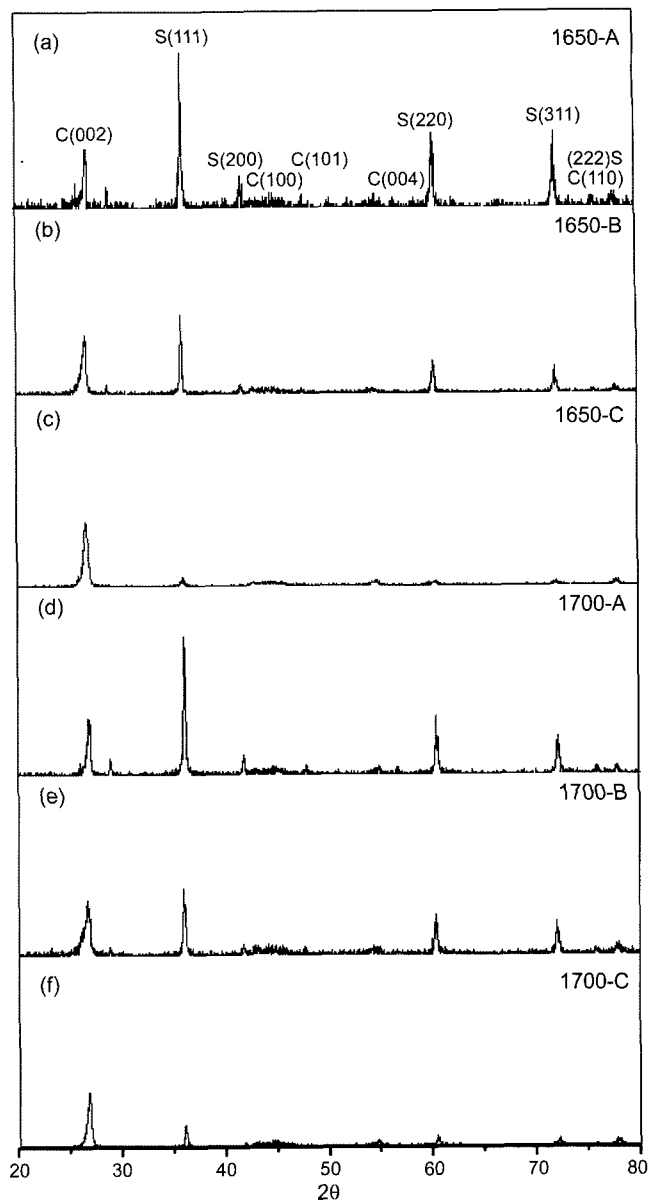


Fig. 5. XRD results of conversion SiC coated graphite samples with SOC powder bed; (a) A sample, (b) B sample, (c) C sample treated at 1650°C , and (d) A sample, (e) B sample, (f) C sample treated at 1700°C ; C:Carbon (JCPDS #41-1487), S:SiC (JCPDS #29-1129).

를 위해 carbon의 주 peak인 C(002)의 회절 강도를 동일하게 고정했고, 이에 따른 SiC의 주 peak인 SiC(111)의 상대적인 비($I_{\text{C}(002)}/I_{\text{SiC}(111)}$)를 계산하였다. 그 결과 1650°C 에서는 (a)=0.381, (b)=0.753, (c)=7.273이고 1700°C 에서는 (d)=0.407, (e)=0.826, (f)=2.612로 온도에 따른 유의미한 차이는 관찰할 수 없었으며, 밀도가 높을수록 carbon의 회절강도가 SiC의 회절강도에 비해 상대적으로 커졌다.

Fig. 6은 SOCB 조성의 분위기분말 ($\text{SiO}_2:\text{SiC}:\text{B}_4\text{C}=6:2:1$)로 기상화학반응을 실시하였을 때 XRD 분석 결과이다. 모든 조건에서 carbon peak는 관찰할 수 없었고, 결

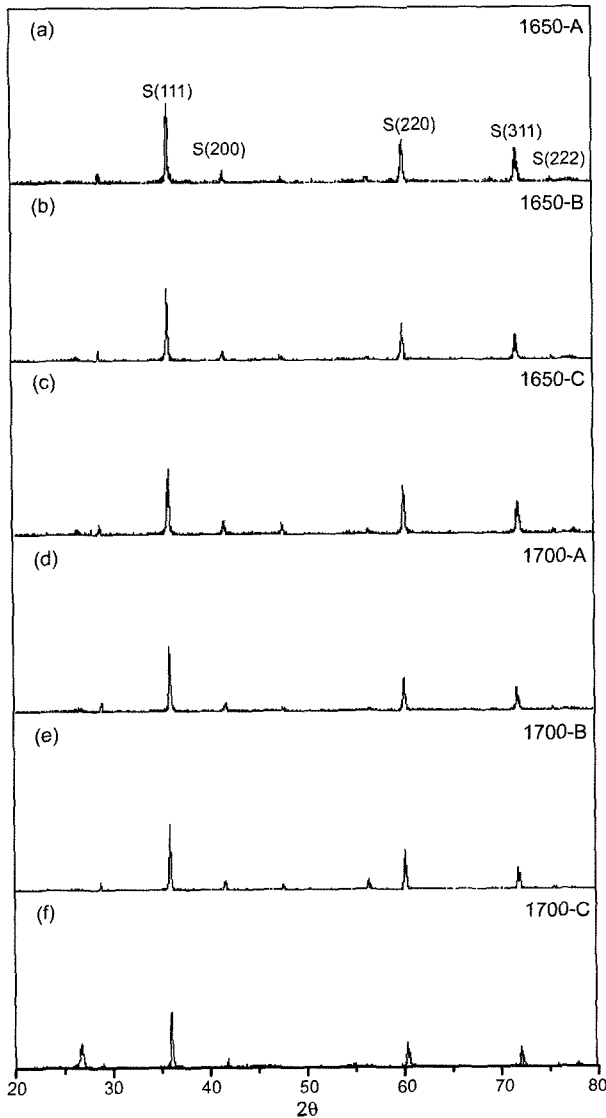


Fig. 6. XRD results of conversion SiC coated graphite samples with SOCB powder bed; (a) A sample, (b) B sample, (c) C sample treated at 1650°C, and (d) A sample, (e) B sample, (f) C sample treated at 1700°C; C:Carbon (JCPDS #41-1487), S:SiC (JCPDS #29-1129).

정성이 높은 SiC(cubic, JCPDS #29-1129)가 코팅층의 주를 이루었다. 동일한 증착 조건에서 밀도가 다른 모재 (a), (b), (c)나 (d), (e), (f)를 비교하였을 때, 밀도의 차이에서 기인한 peak의 변화는 없었다.

분위기분말에 보론 카바이드의 첨가는 표면층의 미세 구조에도 영향을 미치는 것으로 관찰되었다. Fig. 7은 SOC, SOCB 조성의 분위기분말을 이용하여 밀도가 다른 A, B, C 흑연 모재 위에 1700°C에서 1시간 기상화학반응을 실시한 후 코팅층 표면의 미세구조를 관찰한 주사전자현미경 사진이다. SOC 조성의 분위기 분말을 사용한 (a), (c), (e)의 경우 미세한 결정립 입자들이 형성되었고 군데 군데 큰 SiC 결정립과 용융된 듯한 입자가 존재하는 것을

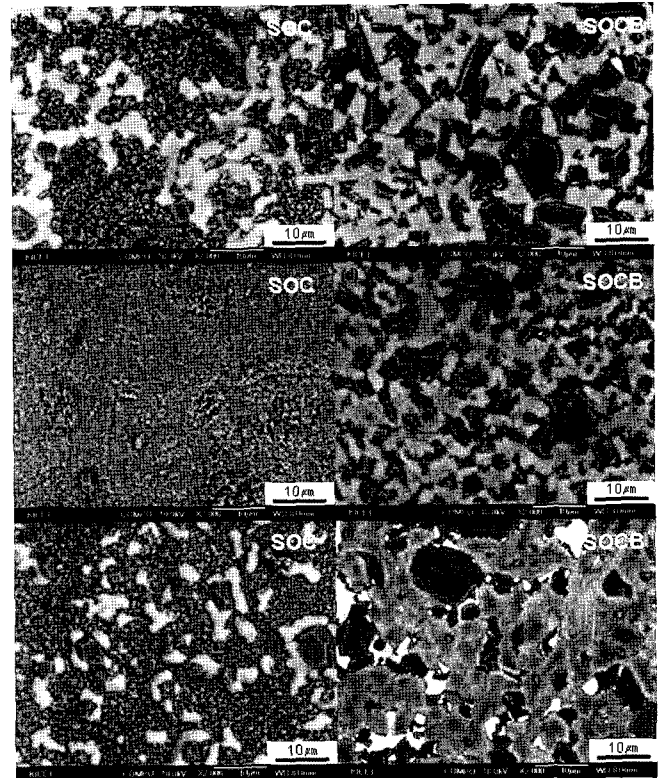


Fig. 7. FE-SEM micrographs taken with a composition image mode of conversion SiC coated graphite surface at 1700°C for 1 h. (a), (c), (e) with SOC powder bed and (b), (d), (f) with SOCB powder bed.

확인하였다. SOCB 조성의 분위기 분말을 사용한 경우 큰 SiC 결정립 사이를 용융된 듯한 물질이 전체적으로 다 채워진 것을 관찰할 수 있었다.

큰 결정립과 용융된 듯한 입자의 성분의 정확한 확인을 위하여 EDS 성분 분석을 실시하였다. Fig. 7의 (f) 시편에 대하여 EDS 성분 분석을 실시한 결과, 코팅층의 아랫부분에 존재하는 큰 결정립들은 Si와 C가 1:1의 원자비로 존재하는 것을 확인하였고, 위쪽의 용융된 듯한 입자는 Si인 것으로 확인이 되었다. 이는 $\text{SiO}_{(V)}$ 의 과잉으로 인해 흑연과 반응을 통해 SiC로의 전환이 다 이루어진 후에도 계속적인 $\text{SiO}_{(V)}$ 의 공급으로 더 이상 SiC로의 전환은 이루어지지 않고, 그 위에 $\text{SiO}_{(V)}$ 가 덮혀 Si 상태로 존재한 것으로 판단된다. 이는 Fig. 6의 XRD와는 다른 결과처럼 보이나, EDS는 코팅층의 표면의 매우 얇은 단위를 관찰하였기 때문에 이러한 차이가 발생한 것이라 생각되며 코팅층에 대한 더욱 정밀한 분석과 산화 거동에 대한 평가 등이 수행될 예정이다.

4. 결 론

Si, SiO_2 , SiC 혼합 분말을 분위기 조성용 분말로 사용하여 화학기상반응(CVR)을 통한 흑연의 SiC 코팅을 실시

하여 다음과 같은 결론을 얻었다. 1) 흑연 모재의 표면에 생성된 SiC 전환층은 매우 얇으나, 모재의 깊은 부분까지 침투가 이루어졌다. 흑연 모재의 밀도가 낮을수록 SiC의 회전 강도가 상대적으로 높아지는 것을 확인할 수 있었다. 2) Si, SiO₂, SiC의 분말에 B₄C를 첨가한 경우, 50 μ m 이상의 SiC 전환층이 연속적으로 균일하게 형성되었다. 모재의 밀도에 대한 영향은 없었다. 3) 표면에서 연속적인 두꺼운 코팅층이 형성되는 것은 boron 첨가에 의하여 SiC/C계에서 체적확산 및 계면확산이 촉진되었기 때문으로 생각된다.

Acknowledgment

본 연구는 중소기업청과 모던카본(www.carbon.co.kr. 대표 장승조)이 중소기업 산학연 컨소시엄 사업을 통한 연구비 지원에 의하여 수행되었으므로 이에 감사드립니다.

REFERENCE

1. L. Xiaowei, R. Jean-Charles, and Y. Suyuan, "Effect of Temperature on Graphite Oxidation Behavior," *Nuc. Eng. and Design*, **227** 273-80 (2004).
2. E. L. Fuller and J. M. Okoh, "Kinetics and Mechanisms of the Reaction of Air with Nuclear Grade Graphites: IG-110," *J. Nuc. Mat.*, **240** 241-50 (1997).
3. C. G. Choi, W. J. Lee, and C. O. Park, "The Effects of Inhibitors Impregnated in C/C Composite at High Temperature," *J. Kor. Ceram. Soc.(in Korean)*, **28** [6] 478-82 (1991).
4. Y. H. Yun and S. C. Choi, "Fabrication of SiC Converted Graphite by Chemical Vapor Reaction Method (I)," *J. Kor. Ceram. Soc.(in Korean)*, **38** [12] 1199-1204 (1997).
5. I. C. Suh, D. I. Kim, B. H. Yeh, B. Jung, and C. O. Park, "Multi-layer Coating for Improvement of Anti-Wear Property of Graphite," *J. Kor. Ceram. Soc.(in Korean)*, **31** [8] 874-78 (1994).
6. K. N. Lee, D. S. Fox, and N. P. Bansal, "Rare Earth Silicate Environmental Barrier Coatings for SiC/SiC Composites and Si₃N₄ Ceramics," *J. Eur. Ceram. Soc.*, **25** 1705-15 (2005).
7. K. J. Kim, K. Y. Cho, Y. C. Park, T. K. Kim, Y. H. Chung, and Y. S. Lim, "Improvement of Oxidation-Resistance of Graphite by Phosphate," *J. Kor. Ceram. Soc.(in Korean)*, **36** [5] 555-69 (1999).
8. I. C. Suh, W. J. Lee, B. H. Yeh, and C. O. Park, "A Study of the Pack Cemented SiC Coating on Graphite by Experimental Design," *J. Kor. Ceram. Soc.(in Korean)*, **29** [10] 785-90 (1992).
9. H. S. Kim, D. J. Choi, and D. J. Kim, "Surface Modification Using CVD-SiC," *J. Kor. Ceram. Soc.(in Korean)*, **33** [7] 761-70 (1996).
10. W. J. Kim, J. Y. Park, J. I. Kim, G. W. Hong, and J. Ha, "Deposition of Large Area SiC Thick Films by Low Pressure Chemical Vapor Deposition (LPCVD) Method," *J. Kor. Ceram. Soc.(in Korean)*, **38** [5] 485-91 (2001).
11. Q. G. Fu, H. J. Li, X. H. Shi, K. Z. Li, and G. D. Sun, "Oxidation Protective Glass Coating for SiC Coated Carbon/Carbon Composites for Application at 1773 K," *Mat. lett.*, **60** [3] 431-34 (2006).
12. D. J. Choi and H. S. Kim, "The Effect of Diluent Gases on the Growth Behavior of CVD SiC," *J. Kor. Ceram. Soc.(in Korean)*, **34** [2] 131-38 (1997).
13. F. Zhiqiang, T. Chunhe, and L. Tongxiang, "Structure of SiC Coatings from Polycarbosilane on Graphite for Fuel Element Matrix of High Temperature Gas-Cooled Reactor," *Surf. & Coat. Tech.*, **200** 3950-59 (2006).
14. O. H. Kim, S. Y. Lee, B. I. Yun, and J. O. Park, "Improvement of Oxidation Resistance and Erosion Resistance Properties of the C/C Composite with the Multi Coating," *J. Kor. Ceram. Soc.(in Korean)*, **32** [9] 1003-08 (1995).
15. J. Y. Kim, I. P. Hong, and S. L. Sung, "Improvement of Oxidative Resistance for Graphite Coated with SiC by Pack Cementation," *J. Kor. Soc. Comp. Mat.*, **7** 1 (1994).
16. J. I. Kim, I. S. Park, and H. J. Joo, "Oxidation Behavior of SiC Coated Carbon/Carbon Composite by Pack-cementation Method," *J. Kor. Soc. Comp. Mat.*, **13** [2] 22-9 (2000).
17. J. W. Kim, K. Y. Cho, Y. C. Park, T. K. Kim, Y. H. Chung, and Y. S. Lim, "SiC Oxidation Protective Coating for Graphite Mould," *Key Engineering Materials.*, **287** 57-62 (2005).
18. Y. H. Yoon, S. C. Choi, J. C. Chang, and J. C. Kim, "The Conversion Mechanism of SiC Conversion Layers on Graphite Substrate by CVR," *J. Ceram. Process. Res.*, **2** [3] 129-33 (2001).
19. H. J. Choi and J. G. Lee, "Synthesis of Silicon Carbide Whiskers (I): Reaction Mechanism and Rate-Controlling Reaction," *J. Kor. Ceram. Soc.(in Korean)*, **35** [12] 1329-36 (1998).
20. Q. G. Fu, H. J. Li, X. H. Shi, K. Z. Li, and G. D. Sun, "Silicon Carbide Coating to Protect Carbon/Carbon Composites against Oxidation," *Scripta Materialia*, **52** 923-27 (2005).
21. T. M. Wu, K. H. Won, and W. C. Wei, "Processing and Measurement of Basic Properties of SiC and Cordierite Coatings of Carbon/Carbon Composite," *Surf. & Coat. Tech.*, **78** 64-71 (1996).